



①9 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

①2 Offenlegungsschrift  
①0 DE 196 39 517 A 1

⑤ Int. Cl.<sup>6</sup>:  
H 01 M 8/12

②1 Aktenzeichen: 196 39 517.8  
②2 Anmeldetag: 26. 9. 96  
②3 Offenlegungstag: 9. 4. 98

DE 196 39 517 A 1

⑦1 Anmelder:

Winkler, Wolfgang, Prof. Dr., 21423 Winsen, DE;  
AEG Energietechnik GmbH, 60528 Frankfurt, DE

⑦4 Vertreter:

Schmidt-Bogatzky, J., Dipl.-Ing. Dr.-Ing., Pat.-Anw.,  
21073 Hamburg

⑦2 Erfinder:

Winkler, Wolfgang, Prof. Dr., 21423 Winsen, DE

⑤6 Entgegenhaltungen:

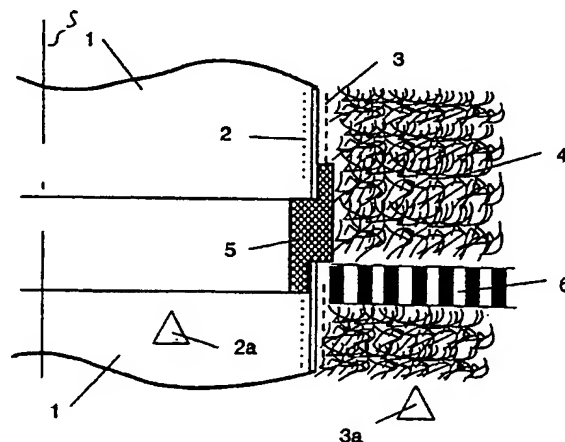
US	53 38 623 A
US	52 73 839 A
US	52 73 838 A
EP	05 86 264 A1
EP	01 33 747 A1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤4 Brennstoffzelleneinrichtung

⑤7 Gegenstand der Erfindung ist eine Brennstoffzelleneinrichtung mit Hochtemperatur-Brennstoffzellen. Rotationssymmetrische Brennstoffzellen (1), die insbesondere als Rohrelemente ausgebildet sind, werden innen auf der Kathodenseite (2) mit Luft (2a) und außen an der Anodenseite (3) mit Brenngas (3a) beaufschlagt. Die Brennstoffzellen werden außen an der Anodenseite vollständig mit einem hochtemperaturbeständigen, leitfähigen Metallfilz kontaktiert und bilden dadurch eine Spannungsebene.



DE 196 39 517 A 1

Die Erfindung bezieht sich auf eine Brennstoffzellen-einrichtung mit Hochtemperatur-Brennstoffzellen. Brennstoffzellen werden zunehmend zur direkten Stromerzeugung aus der Verbrennungsreaktion des Brennstoffes in der Energietechnik eingesetzt. Werden diese Brennstoffzellen bei hoher Temperatur betrieben (Hochtemperaturbrennstoffzellen), so läßt sich auch die weitestgehend isotherm mit Zelltemperatur zur Verfügung stehende Zellabwärme zur weiteren Stromerzeugung in einem Wärmekraftprozeß nutzen. Diese stufenweise Nutzung des thermodynamischen Potentials der Verbrennungsreaktion durch die Brennstoffzelle und einen Wärmekraftprozeß läßt elektrische Wirkungsgrade bis zu 80 % erwarten (Winkler W.: Möglichkeiten der Auslegung von Kombikraftwerken mit Hochtemperaturbrennstoffzellen. BWK 44 (1992) Nr. 12, S. 533–538; Winkler W.: Analyse des Systemverhaltens von Kraftwerksprozessen mit Brennstoffzellen. BWK 45 (1993) Nr. 6, S. 302–307; Winkler W.: Der Einfluß der Prozesskonfiguration auf das Arbeitsvermögen von Verbrennungskraftprozessen. BWK 46 (1994) Nr. 7/8, S. 334–340).

Eine besonders aussichtsreiche Entwicklung stellt die oxidkeramische Brennstoffzelle (SOFC = Solid Oxide Fuel Cell) dar, die sowohl in planarer als auch in röhrenförmiger Bauweise entwickelt wird. Aus diesen Grundelementen sind für den Kraftwerkeinsatz geeignete Strukturen, Stapel oder auch Stacks genannt, aufzubauen. Dabei werden die Brennstoffzellen elektrisch seriell verschaltet, um von einer Zellspannung von etwa 0,7 V auf technisch nutzbare Spannungen zu kommen. Eine parallele Verschaltung der einzelnen Zellen des gleichen Spannungsniveaus sorgt für die notwendige Redundanz bei Ausfall einzelner Zellen. Schließlich muß durch eine stufenweise Verbrennung des Brenngases in spannungsseitig getrennten Zellen (Kaskadierung) noch für eine möglichst hohe Ausnutzung der Arbeitsfähigkeit des Brenngases gesorgt werden. Bei der Konstruktion der Stacks muß außerdem noch beachtet werden, daß die Konstruktion zufriedenstellend gasdicht ausgeführt ist, die Wärmedehnungen sicher beherrscht werden und die Stoffstromverteilung gesichert ist.

Bisher sind im wesentlichen zwei Grundformen von konstruktiven Lösungen für röhrenförmige – oder besser rotationssymmetrische – Zellen bekannt. Die eine Lösung basiert darauf, daß kleinere ringförmige Zellelemente durch Interconnectoren, die gasdicht eine elektrische Kontaktierung zwischen den anoden- und kathodenseitigen Elektroden der Zellelemente herstellen, zu Röhrenzellen verbunden werden. Der Aufbau erinnert an die Schweißverbindung von nahtloser Rohre (vergl. z. B. altes Dornier Konzept & MHI Konzept: Dönitz W., Erdle E., Streicher R.: Oxidkeramische Brennstoffzellen, Prinzip, Entwicklungsstand und Marktmöglichkeiten in H. Wendt u. V. Plzak (Hrsg.): Brennstoffzellen – Stand der Technik Entwicklungslinien Marktchancen. VDI Verlag Düsseldorf. 1990. S. 133–143 & Yoshioka T: et. al.: Development on tubular Type SOFC Module. Proceedings 2nd IFCC Kobe 1996. S. 251–254). Dabei wird das Brenngas innen und die Verbrennungsluft außen zugeführt. Die Kaskadierung der Verbrennungsführung ist Ergebnis der konstruktiven Ausbildung. Wenngleich Stacks aus mehreren Röhrenzellen über eine gemeinsame Luftversorgung verfügen, so ist eine elektrische Verbindung der Zellen gleichen Spannungsniveaus zur Sicherstellung der notwendigen Redundanzen für den

Stromfluß bei Ausfall eines Zellelementes praktisch ausgeschlossen. Eine metallische Verbindung, beispielsweise mit Nickelfilz verbietet sich wegen der auftretenden Oxidation. Keramische Verbindungen scheinen auch nicht geeignet, da Dehnungsprobleme zu erwarten sind.

Die zweite Lösung geht von einem in Längsrichtung des Rohres offenen Elektrolyten aus, der erst durch den Interconnector geschlossen, die notwendigerweise gasdichte Röhre bildet (vergl. Westinghouse Konzept z. B. in: The Westinghouse solid oxide fuel cell program – A 1992 progress report. Westinghouse Electric Corporation. Pittsburgh. 1992). Dabei ist die Kathode auf der Innenseite des Rohres aufgebracht und wird über den Interconnector kontaktiert. Auf der Außenseite ist die Anode so aufgebracht, daß keine elektrische Verbindung zum Interconnector besteht. Auf einer Seite ist die Röhre geschlossen. Der konstruktive Aufbau erinnert an ein längsgeschweißtes Rohr. Die Verbrennungsluft wird durch eine innenliegende Keramikröhre in das Zellrohr nahe dem geschlossenen Ende eingebracht und strömt längs der Kathodenseite der Zelle nach außen. Das Brenngas wird außen zugeführt. Die serielle Schaltung der einzelnen Zellen erfolgt über die Kontaktierung einer Zelle durch den Interconnector mit Nickelfilz an der Anodenseite der nächstfolgenden Zelle. Durch eine Zugabe des Brenngases in Flußrichtung des elektrischen Stromes ermöglicht auch diese Konstruktion eine Kaskadierung. Durch eine anodenseitige Kontaktierung der einzelnen Zellen gleichen Spannungsniveaus mit Nickelfilz läßt sich die gewünschte Redundanz erreichen. Nachteilig bei dieser Konstruktion ist es, daß

- der Elektrolyt keine zusammenhängende Röhre bildet,
- die an der Außenseite der Röhre erfolgende Kontaktierung insgesamt drei Spannungsebenen betrifft und es daher sorgfältigen Arbeitens bedarf, um Kurzschlüsse zu vermeiden und
- die innenliegende Röhre zur Luftzufuhr, den Rohrdurchmesser nach unten hin und damit die Leistungsdichte nach oben hin begrenzt.

#### Aufgabe der Erfindung

Die Aufgabe der Erfindung ist es, die Konstruktion der Hochtemperatur-Brennstoffzellen und des Stacks nach den nachfolgenden Kriterien zu gestalten.

- Die Brennstoffzellen sollen elektrisch seriell verschaltet werden können, um von einer Zellspannung von etwa 0,7 V auf technisch nutzbare Spannungen zu kommen.
- Eine parallele Verschaltung der einzelnen Zellen des gleichen Spannungsniveaus soll möglich sein, um für die Redundanz bei Ausfall einzelner Zellen zu sorgen.
- Durch eine stufenweise Verbrennung des Brenngases in spannungsseitig getrennten Zellen (Kaskadierung) soll für eine möglichst hohe Ausnutzung der Arbeitsfähigkeit des Brenngases gesorgt werden.
- Die Konstruktion soll zufriedenstellend gasdicht ausgeführt sein und die Wärmedehnungen sollen sicher beherrscht werden.
- Es soll eine gleichmäßige Stoffstromverteilung innerhalb der Zelle und des Stacks der Zellen gewährleistet werden.
- Der Elektrolyt soll eine zusammenhängende

Röhre bilden.

— Weiterhin soll an der Außenseite die Kontaktierung der Röhren erfolgen, daß Kurzschlüsse bereits konstruktiv weitgehend vermieden werden können.

— Eine Begrenzung des Rohrdurchmessers nach unten hin und damit die Leistungsdichte nach oben hin soll konstruktiv weitgehend ausgeschlossen werden.

— Die Konstruktion soll den Anforderungen zur Wärmeauskopplung und zur Integration der Brennstoffaufbereitung gerecht werden (vergl. Winkler W.: SOFC-Integrated Power Plants for Natural Gas. Proceedings 1st European Solid Oxide Fuel Cell Forum. Ulf Bossel. Luzern. 1994. ISBN 3-922148-14-X. S. 821—848 und Winkler W.: Grundsätze der Auslegung kombinierter Brennstoffzellen-Kraftwerke. VDI Bericht 1174. "Energieversorgung mit Brennstoffzellenanlagen — Stand und Perspektiven". VDI Verlag Düsseldorf. 1995. S. 131—154).

#### Lösung der Aufgabe

Die Aufgabe wird bei einer Hochtemperatur-Brennstoffzelle erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß die Hochtemperatur-Brennstoffzellen jeweils rotations-symmetrisch mit innenliegender Kathode und außen angeordneter Anode ausgebildet sind, daß die Brennstoffzellen innen mit Luft und außen mit Brenngas beaufschlagt werden und daß die Brennstoffzellen auf der Anodenseite durch einen bei den hohen Temperaturen beständigen Metallfilz elektrisch leitend miteinander verbunden sind.

Der Grundgedanke der Erfindung beruht darauf, daß von rotationssymmetrischen Zellen z.B. ausgebildet als Rohrelemente ausgegangen wird, die innen auf der Kathodenseite mit Luft und außen an der Anodenseite mit Brenngas beaufschlagt werden und außen an der Anodenseite beispielsweise mit Nickelfilz oder einem anderen elektrisch leitenden Material ähnlicher Struktur kontaktiert werden. Wenn im weiteren nur von Nickelfilz gesprochen wird, ist auch ein anderes Material ähnlicher Struktur eingeschlossen, d. h. ein bei den hohen Temperaturen der Brennstoffzelle beständiges, elektrisch leitendes Filz. Damit wird eine Spannungsebene gebildet und es werden alle Röhren dieser Spannungsebene miteinander kontaktiert. Diese Konzeption hat den Vorteil, daß der Anodenraum mit einer porösen Schicht aus Nickelfilz o. ä. Kontaktierungsmaterial gefüllt werden kann, ohne daß auf die Lage des Filzes geachtet werden muß. Die Hauptströmungsrichtung des Brenngases ist parallel zur Rohrachse, wobei sowohl eine Gleichstrom- als auch eine Gegenstromanordnung denkbar ist. Dabei wird eine gleichförmige Verteilung der Brenngasströmung durch entsprechende Widerstandselemente am Eintritt und/oder durch eine Brennstoffeindüsung an mehreren Stellen erreicht. Damit ist der konstruktive Aufbau des Stackelements einer Spannungsebene definiert.

Die Hauptströmungsrichtung des Brenngases wird insbesondere parallel zur Rohrachse geführt. Hierdurch ist ein Gleichstrom- und eine Gegenstromanordnung möglich. Zweckmäßigerweise wird eine gleichförmige Verteilung der Brenngasströmung durch Widerstandselemente am Gaseintritt und/oder mit Eindüsung an mehreren Stellen erreicht. Vorzugsweise sind die Brennstoffzellen verschiedener Spannungsebenen je-

weils durch ringförmige Interconnectoren gasdicht miteinander verbunden, wobei jeweils die Kathodenseite der Brennstoffzellen der einen Spannungsebene mit den Anodenseiten der Brennstoffzellen der anderen Spannungsebene über die Interconnectoren leitend miteinander verbunden sind.

Bei einer bevorzugten Ausführungsform sind die Anodenseiten der Brennstoffzellen einer Spannungsebene von den Anodenseiten der Brennstoffzellen der benachbarten Spannungsebene je durch gasdurchlässige Zwischenböden aus Isoliermaterial voneinander getrennt. Die Brennstoffzellen sind aber nicht mit den Zwischenböden verspannt, sondern die Zwischenböden erlauben geringe Ausgleichbewegungen.

Die Brennstoffzellen, die an der Eintrittsseite der Luft an einem Stack angeordnet sind, sind zweckmäßigerweise an ihren der Eintrittsseite zugewandten Enden in eine Lochplatte gasdicht eingepaßt. Auf diese Weise wird der Durchtritt von Gasen an den äußeren Seiten der Brennstoffzellen verhindert. Die Lochplatte besteht aus elektrisch leitendem Material mit gleichem Dehnungsverhalten wie das Material der Brennstoffzellen und ist leitend mit den Anoden der Brennstoffzellen verbunden.

Die Serienschaltung der Brennstoffzellen kann aber auch an der Lochplatte mit einer kathodenseitigen Kontaktierung begonnen werden, wobei eine Isolierung zwischen Lochplatte und dem hochtemperaturbeständigen Metallfilz vorgesehen wird.

An den Austrittsseiten der Gase sind die Brennstoffzellen vorzugsweise so ausgebildet, daß beide Gasströme getrennt zu einer Nachverbrennungskammer geführt werden. An den Austrittsseiten der Brennstoffzellen sind insbesondere düsenförmige Austritts-Interconnectoren vorgesehen, die eine leitende Verbindung zur Stromableitung der Brennstoffzellen-Stacks herstellen. Die Verbindung zwischen Austritts-Interconnector und der jeweiligen Brennstoffzelle am Stack-Ausgang ist dabei bevorzugt so ausgebildet, daß an den Verbindungsstellen ständig Anodengas vorhanden ist. Hierdurch wird eine Oxidation vermieden.

Der hochtemperaturbeständige, elektrisch leitende Metallfilz besteht bei einer bevorzugten Ausführungsform aus Nickel. Innerhalb des Nickelfilzes sind vorzugsweise zusätzliche, starre Stromableitungen in einem gewissen Umfang beweglich angeordnet. Hierdurch wird der Widerstand der Stromableitung verringert. Am Austritt der insbesondere röhrenförmigen Brennstoffzellen befindet sich im Stack ein elektrisch leitender Düsenboden oder ein leitendes Netz.

Dabei sind Vorkehrungen getroffen, daß die Stickoxidbildung bei der Abgasverbrennung weitgehend vermieden wird.

Eine besonders einfache konstruktive Lösung besteht darin, daß die Anodenseite am Austritt jedes Brennstoffzellenrohres der letzten Spannungsebene über den Nickelfilz die Stromableitung des Stacks herstellt. Auch die Verbindung zwischen Anodenseite am Austritt der Brennstoffzellenröhren und der Stromableitung ist so ausgebildet, daß sie ständig von Anodengas benetzt wird.

Bei Gegenstromanordnung wird das Brenngas im Bereich des Luftaustritts zugegeben. Der Austrittsbereich der Verbrennungsluft wird so ausgebildet, daß die Stromableitung der Kathodenseite — gasdicht ausgeführt — den Zellbereich und den Austrittsbereich zur Verhinderung einer Gasmischung trennt. Das frische Brenngas wird dabei zweckmäßigerweise entgegen der

Strömung der Verbrennungsluft entlang dem Luftertritt geführt. Dort wird das bei der Verbrennung entstehende Abgasprodukt umgelenkt und durch Kanäle zum Luftaustrittsbereich geführt, worauf es in die Nachbrennkammer gelangt.

Zur Verhinderung von Kurzschlüssen zwischen den einzelnen Spannungsebenen sind vorzugsweise durchgehende keramische Wände oder Kombinationen aus metallischen Wänden mit keramischen Isolationsstücken im Übergangsbereich zwischen den Spannungsebenen vorgesehen.

Insbesondere wird die Verbrennungsluft von einer Versorgungsleitung kommend zu einem Luftkasten und von dort der Kathodenseite der Brennstoffzellen zugeführt. Das Brenngas kann auch bei einer zweckmäßigen Ausführungsform über eine Brenngasleitung seitlich an mehreren Stellen und/oder über eigene Düsen in der Lochplatte in das jeweilige Stack eingeleitet werden.

Vorteilhaft ist die Ausbildung des jeweiligen Stacks ähnlich einem Flachbrenner. Das Stack kann auch kreis-, ringförmig oder sechseckig sein. Die Nachbrennkammer ist dabei insbesondere als gemeinsame Brennkammer ausgebildet.

Es ist günstig, wenn die Kühlrohre als Strahlungskühler ausgebildet sind sowie aus elektrisch isolierendem Material bestehen, wodurch Kurzschlüsse vermieden werden.

Die an der Brennstoffzelle freiwerdende Wärme wird vorzugsweise unmittelbar für den endothermen Prozeß der Brennstoffaufbereitung ausgenutzt. Hierfür kann entsprechendes Katalysatormaterial in den Röhren vorgesehen sein.

Es kann eine Kohle- oder Biomassevergasung in einer allothermen Vergasung vorgesehen sein, wobei die von den Stacks beheizten Röhren und/oder die Nachbrennkammer als Wärmequelle dienen.

Besonders vorteilhaft ist es, ein durchgehendes, poröses Trägerrohr aus nicht leitendem Material von gleicher Wärmedehnung wie der Elektrolyt zu verwenden und auf dem Rohr Kathodenmaterial, Elektrolyt und Anode als separate Zellen sowie den Interconnector zwischen den Zellen mittels Dünnschicht- oder Sintertechnik aufzubringen.

#### Beschreibung von bevorzugten Ausführungsbeispielen

Die Erfindung wird im folgenden an Hand eines in einer Zeichnung dargestellten Ausführungsbeispiels näher beschrieben, aus dem sich weitere Einzelheiten, Merkmale und Vorteile ergeben.

Es zeigen:

Fig. 1 einen Teil einer Brennstoffzelleneinrichtung schematisch im Schnitt,

Fig. 2 eine Brennstoffzelleneinrichtung mit in Serie geschalteten röhrenförmigen Brennstoffzellen schematisch im Schnitt,

Fig. 3a eine Brennstoffzelleneinrichtung mit einer Anordnung für die Brenngaszufuhr im Gegenstrom schematisch,

Fig. 3b eine Brennstoffzelleneinrichtung mit einer Anordnung für die Brenngaszufuhr im Gleichstrom schematisch,

Fig. 4 eine Brennstoffzelleneinrichtung mit einer Brenngaszufuhr im Gleichstrom und zahlreichen Stacks von Brennstoffzellen.

Die Fig. 1 zeigt erfindungsgemäß eine Brennstoffzelleneinrichtung prinzipieller Art. Rotationssymmetrische Hochtemperatur-Brennstoffzellen (SOFC) 1 haben am

Umfang innenliegende Kathoden 2 und außenliegende Anoden 3. Vorzugsweise sind die Brennstoffzellen als Rohre ausgebildet. Die Brennstoffzellenrohre werden innen auf der Kathodenseite mit Luft, die mit 2a bezeichnet ist, und außen auf der Anodenseite mit Brenngas beaufschlagt, das mit 3a bezeichnet ist. Die Spitzen der Dreiecke 2a, 3a zeigen in Strömungsrichtung. Die Einrichtung gemäß Fig. 1 ist rotationssymmetrisch in Bezug auf eine Mittelachse S. Auf der Anodenseite sind die Brennstoffzellenrohre durch einen hochtemperaturbeständigen, elektrisch leitenden Metallfilz kontaktiert, bei dem es sich insbesondere um Nickelfilz 4 handelt. Statt Nickelfilz kann ein anderes Material ähnlicher Struktur verwendet werden. Durch die elektrisch leitende Verbindung auf dem gleichen räumlichen Niveau angeordneter Brennstoffzellenrohre 1 wird eine Spannungsebene gebildet. Diese Konzeption hat den Vorteil, daß der Anodenraum mit der porösen Schicht 4 o.a. Kontaktierungsmaterial gefüllt werden kann, ohne daß auf die Lage des Filzes geachtet werden muß. Die Hauptströmungsrichtung des Brenngases ist parallel zur Rohrachse S, wodurch sowohl eine Gleichstrom- als auch eine Gegenstromanordnung möglich ist. Dabei wird eine gleichförmige Verteilung der Brenngasströmung durch entsprechende Widerstandselemente am Eintritt und/oder durch eine Brennstoffeindüsung an mehreren Stellen eines Brennstoffzellenstapels oder Stacks erreicht. Damit ist der konstruktive Aufbau des Stackelements einer Spannungsebene definiert.

Zum Aufbau eines Stacks müssen noch eine getrennte Zu- und Abfuhr der Gasströme der Anoden- 3 (Brenngas- und Reaktionsproduktgas 3a) und Kathodenseite 2 (Verbrennungsluft und Abluft 2a), die elektrische Leitungsführung, die Kaskadierung und die Nachverbrennung von Anoden und Kathodenabgas, sowie die Einbindung der Brenngasaufbereitung und der Stackkühlung vorgesehen werden. Im weiteren wird der Gasstrom auf der Anodenseite auch als Anodengas 3a und auf der Kathodenseite auch als Kathodengas 2a bezeichnet, unabhängig von der Art der jeweiligen lokalen Gaszusammensetzung.

Die Kaskadierung erreicht man erfindungsgemäß sehr einfach, indem man Stackelemente mehrerer Spannungsebenen so miteinander verbindet, daß die Elemente elektrisch seriell verschaltet werden. Dabei werden die einzelnen Röhren mit ringförmigen Interconnectoren 5 gasdicht so verbunden, daß die Kathodenseite 2 des Stackelementes n mit der Anodenseite 3 des Stackelementes n + 1 über die Interconnectoren kontaktiert werden. Das Interconnectormaterial (z. B. Lanthanchromid) muß bei der Betriebstemperatur elektrisch leitend und chemisch stabil sein sowie etwa gleichartige Wärmedehnungseigenschaften wie das Elektrolytmaterial (Ytteriumdotiertes Zirkonoxid) haben. Damit kein Kurzschluß im Stack auftritt, muß sichergestellt werden, daß die Anodenseiten der einzelnen Stackelemente elektrisch voneinander getrennt sind. Gleichzeitig muß aber auch das Brenngas, bzw. das Gasgemisch aus Brenngas und Produktgas ungehindert von einem Stackelement zum nächsten strömen.

Dies wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß ein gasdurchlässiger Zwischenboden 6 aus Isolatormaterial, der beispielsweise als Düsenboden ausgebildet sein kann, mit entsprechenden Durchtritten für die Brennstoffzellenröhren zwischen die einzelnen Stackelemente eingelegt wird oder Distanzhalter aus Isolatormaterial eingesetzt werden, die einen Kurzschluß zwischen zwei Spannungsebenen vermeiden. Dabei ist es zweckmäßig,

daß die Röhren durch diese Zwischenböden nicht eingespannt sind, sondern sich möglichst frei bewegen können, um mögliche Dehnungsbehinderungen von vorne herein auszuschließen. Es bietet sich an, als Isolatormaterial Zirkonoxid zu verwenden. Damit ist die erfindungsgemäße Funktion der Kaskadierung und der anodenseitigen Parallelschaltung der einzelnen Spannungsebenen innerhalb des Stacks gesichert. Es verbleibt noch der elektrische und gasseitige Anschluß des Stacks an das Gesamtsystem zu lösen.

Die Röhren der luftseitig ersten Gruppe von Stackelementen wird dazu erfindungsgemäß in eine Lochplatte 7 gasdicht so eingepaßt, daß die Verbrennungsluft 2a in die Röhren einströmen kann, ohne mit dem Brenngas 3a in Kontakt zu kommen. Dabei besteht die Lochplatte 7 aus elektrisch leitendem Material mit möglichst gleichem Dehnungsverhalten wie die SOFC (z. B. Lanthanchromid) und ist leitend mit der Anode 3 der SOFC verbunden. Die serielle Schaltung der Brennstoffzellen kann auch an der Lochplatte bei entsprechend geänderter Schaltung der Zellen mit einer kathodenseitigen Kontaktierung begonnen werden. Dabei ist dann die Notwendigkeit einer Isolierung zwischen Lochplatte und Nickelfilz gegeben.

Der Austritt von Anoden- 3a und Kathodengas 2a aus dem Stack ist dann erfindungsgemäß so ausgebildet, daß beide Gasströme zu einer Nachverbrennungskammer 8 geführt werden. Dazu wird der Anodengasraum zunächst durch einen gasdurchlässigen Zwischenboden 9 oder Distanzhalter aus Isolatormaterial für Elektronen nach außen hin elektrisch isoliert. Dann kann der in dem Stack erzeugte elektrische Strom auf der Kathodenseite abgegriffen werden. Dazu wird erfindungsgemäß die Kathodenseite jedes Rohres zur Kontaktierung mit düsenförmig ausgebildeten Austritts-Interconnectoren 10 versehen. Diese Austritts-Interconnectoren 10 am Rohraustritt stellen die Verbindung zu einer Stromableitung 11 des Stacks her. Erfindungsgemäß wird diese Verbindung zwischen Austritts-Interconnector 10 und benachbarten Röhren 1 so angeordnet, daß sie immer mit Anodengas benetzt ist und daher eine Oxidation ausgeschlossen ist. Dies gestattet auch den Einsatz von Nickelfilz o. ä. als Werkstoff für die Stromableitung. Diese Bauart hat den Vorteil einer beweglichen Lagerung der Brennstoffzellenröhren am Austritt und vermeidet weitgehend unbeabsichtigte Kräfte auf die Röhre. Innerhalb des Nickelfilzes lassen sich zusätzliche starre Stromableitungen beweglich anbringen, um den Widerstand der Ableitung zu minimieren. Nach außen hin wird die Konstruktion durch den leitenden Düsenboden oder ein leitendes Netz 12 abgeschlossen. Dabei sind Austritts-Interconnector 10 und leitender Düsenboden 12 so ausgebildet und angeordnet, daß die Stickoxidbildung bei der Verbrennung des Anodenabgases weitgehend vermieden wird.

Bei einer Gegenstromanordnung wird das Brenngas 3a im Bereich des Luftaustritts zugegeben und der Austrittsbereich der Verbrennungsluft wird erfindungsgemäß so gestaltet, daß die Stromableitung der Kathodenseite — gasdicht ausgeführt — den Zellbereich und den Austrittsbereich so trennt, daß keine Mischung von Anodenabgas und frischem Brenngas erfolgen kann. Das frische Brenngas strömt entgegen der Strömung der Verbrennungsluft entlang zum Lufteintritt. Dort wird das bei der Verbrennungsreaktion entstandene Brenngas — Produktgas — Gemisch umgelenkt und beispielsweise durch Kanäle, die auch röhrenförmig ausgebildet sein können, zum Bereich des Luftaustritts

geführt und in der Nachbrennkammer mit dem Brenngasrest verbrannt. Die Gleichstromanordnung, die schon oben beschrieben wurde, zeigt Fig. 3b. Der Abschluß des Stacks zur Seite 13 hin muß so erfolgen, daß kein Kurzschluß zwischen den einzelnen Spannungsebenen erfolgen kann. Hier sind verschiedene Lösungen möglich, wie durchgehende keramische Wände, Kombinationen aus metallischen Wänden mit keramischen Isolationsstücken im Übergangsbereich zwischen den einzelnen Spannungsebenen o. ä.

Die so gebildeten Stacks sind modular aufgebaut und lassen sich erfindungsgemäß in ihrer Größe so gestalten, daß die Kühlung des Stacks von außen durch geeignet angebrachte Wärmetauschereinrichtungen, die zur Aufheizung des Arbeitsmittels eines nachgeschalteten Wärmekraftprozesses oder der Beheizung eines sonstigen parallel oder nachgeschalteten endothermen Prozesses dienen können.

Fig. 4 zeigt dazu ein Beispiel in Gleichstromanordnung. Die Verbrennungsluft 2a wird von einer Versorgungsleitung 14 kommend zu einem Luftkasten 16 geführt und tritt von dort in die Kathodenseite der Brennstoffzellen 1 ein. Das Brenngas 3a wird über die Brenngasleitung 15 seitlich in das Stack 17 geführt. Das Stack 17 ist hier ähnlich wie ein Flachbrenner aufgebaut und die Nachbrennkammer 8 ist als gemeinsame Brennkammer ausgebildet. Die Größe der einzelnen Stacks wird dabei maßgeblich von den Kühlbedingungen festgelegt, um einen möglichst isothermen Betrieb der Stacks zu gewährleisten. Bei dieser Anordnung sind die Kühlrohre 18 als Strahlungskühler angeordnet. Eine andere mögliche Variante ist eine Integration der Kühlrohre parallel zu den Zellrohren im Stack selbst. Dabei müssen die Kühlrohre allerdings aus Isolatormaterial bestehen, um Kurzschlüsse im Stack zu vermeiden. Auch eine Kombination von im Stack integrierten Kühlrohren mit außenliegenden Kühlrohren wie in Fig. 4 gezeigt, ist eine weitere mögliche Variante, die die Flexibilität der Erfindung kennzeichnen. Neben der an Flachbrennern erinnernden Konzeption sind auch kreisförmige, ringförmige oder sechseckige Formen für das Stack 17 oder fast beliebige Grundrisse möglich, wenn es die Einbausituation erfordert und die Versorgung mit Luft und Brennstoff sichergestellt werden kann.

Die Brennstoffaufbereitung soll erfindungsgemäß so erfolgen, daß die an der Brennstoffzelle freiwerdende Wärme unmittelbar für den endothermen Prozeß der Brennstoffaufbereitung eingesetzt werden kann. Bei Erdgaseinsatz ist heute die Reformierung üblich. Die in Fig. 4 gezeigte und die oben beschriebenen Anordnungen lassen sich auch zur Integration der Reformierung in das Stack nutzen. Es brauchen dabei nur die Anzahl von Röhren 18, die für die Abdeckung des Wärmebedarfs der Reformierung nötig sind, mit Katalysatormaterial gefüllt zu werden. Bei Kohle- oder Biomassevergasung ist eine allotherme Vergasung ein geeigneter Prozeß und hier können die Röhren 18 oder die Nachbrennkammer 8 als Wärmequelle für die allotherme Vergasung dienen.

Eine zweckmäßige Fortbildung der Erfindung besteht darin, daß ein durchgehendes poröses Trägerrohr aus einem elektrisch nichtleitenden Werkstoff gleicher Wärmeausdehnung wie der Elektrolytwerkstoff verwendet wird. Auf diesem Trägerrohr werden dann Kathodenmaterial, Elektrolyt und Anode als separate Zellen oder Zellabschnitte sowie der Interconnector zwischen den einzelnen Zellen durch eine geeignete Dünnschichttechnik und/oder Sintertechnik aufgebracht.

## Patentansprüche

1. Brennstoffzelleneinrichtung mit Hochtemperatur-Brennstoffzellen, dadurch gekennzeichnet, daß rotationssymmetrische Brennstoffzellen (1), die insbesondere als Rohrelemente ausgebildet sind, innen auf der Kathodenseite (2) mit Luft (2a) und außen an der Anodenseite (3) mit Brenngas (3a) beaufschlagt werden und daß die Brennstoffzellen außen an der Anodenseite vollständig mit einem hochtemperaturbeständigen, leitfähigen Metallfilz kontaktiert werden und dadurch eine Spannungsebene bilden.

2. Brennstoffzelleneinrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Hauptströmungsrichtung des Brenngases parallel zur Rohrachse der Brennstoffzellen (1) geführt ist, und wahlweise eine Gleichstrom- oder eine Gegenstromanordnung vorgesehen ist.

3. Brennstoffzelleneinrichtung nach den Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß für eine gleichförmige Verteilung der Brenngasströmung Widerstandselemente am Eintritt und/oder eine Brennstoffeindüsung an mehreren Stellen vorgesehen sind.

4. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die einzelnen Röhren (1) einer Spannungsebene mit den Brennstoffzellenröhren der nächsten Spannungsebene durch ringförmige Interconnectoren (5) gasdicht so verbunden sind, und daß die Kathodenseite (2) des Stackelementes der Spannungsebene n mit der Anodenseite (3) des Stackelementes der Spannungsebene n + 1 über die Interconnectoren (5) kontaktiert wird.

5. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Anodenseiten der einzelnen Stackelemente elektrisch voneinander so getrennt sind, daß ein gasdurchlässiger Zwischenboden (6) aus Isolatormaterial, der insbesondere als Düsenboden ausgebildet ist, mit entsprechenden Durchtritten für die Zellröhren zwischen die einzelnen Stackelemente eingelegt ist oder Distanzhalter aus Isolatormaterial eingesetzt sind, die einen Kurzschluß zwischen zwei Spannungsebenen vermeiden.

6. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Brennstoffzellenröhren durch die Zwischenböden nicht eingespannt, sondern frei beweglich sind, um mögliche Dehnungsbehinderungen von vornherein auszuschließen.

7. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Brennstoffzellenröhren der luftseitig ersten Gruppe von Stackelementen in eine Lochplatte (7) gasdicht so eingepaßt sind, daß die Verbrennungsluft (2a) in die Röhren einströmen kann, ohne mit dem Brenngas (3a) in Kontakt zu kommen.

8. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Lochplatte (7) aus elektrisch leitendem Material mit möglichst gleichem Dehnungsverhalten wie die Hochtemperatur-Brennstoffzellen besteht (Lanthanchromid) und leitend mit der Anode (3) der Hochtemperatur-Brennstoff-

zelle verbunden ist.

9. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die serielle Schaltung der Brennstoffzellen an der Lochplatte bei entsprechend geänderter Schaltung der Brennstoffzellen mit einer kathodenseitigen Kontaktierung beginnt und eine Isolierung zwischen Lochplatte und Nickelfilz oder einem hochtemperaturbeständigen, elektrisch leitenden Material eingesetzt ist.

10. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß vom Austritt des Anoden- (3a) und des Kathodengases (2a) aus dem Stack der Brennstoffzellen (1) beide Gasströme zu einer Nachverbrennungskammer (8) geführt werden.

11. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8 und 10, dadurch gekennzeichnet, daß der Anodengasraum zunächst durch einen gasdurchlässigen Zwischenboden (9) oder Distanzhalter aus Isolatormaterial für Elektronen nach außen hin elektrisch isoliert ist.

12. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, 10 und 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Kathodenseite am Austritt jedes Brennstoffzellenrohres der letzten Spannungsebene zur Kontaktierung mit den düsenförmig ausgebildeten Austritts-Interconnectoren (10) versehen ist, und daß diese Austritts-Interconnectoren (10) am Rohraustritt die Verbindung zur Stromableitung (11) des Stacks herstellen.

13. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8 und 10, 11, 12, dadurch gekennzeichnet, daß die Verbindung zwischen dem jeweiligen Austritts-Interconnector (10) und benachbarten Brennstoffzellenröhren so angeordnet ist, daß sie immer mit Anodengas benetzt ist und daher eine Oxidation ausgeschlossen ist.

14. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß Nickelfilz oder ein hochtemperaturbeständiger elektrisch leitender Filz als Werkstoff für die Stromableitung verwendet wird.

15. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß innerhalb des Nickelfilzes zusätzliche starre Stromableitungen beweglich angebracht sind, um den Widerstand der Ableitung zu minimieren.

16. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Stackkonstruktionen am Austritt der Brennstoffzellenröhren durch leitenden Düsenboden oder ein leitendes Netz (12) abgeschlossen sind.

17. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Austritts-Interconnectoren und der leitende Düsenboden so ausgebildet und angeordnet sind, daß die Stickoxidbildung bei der Verbrennung des Anodenabgases weitgehend vermieden wird.

18. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, 10 und 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Anodenseite am Austritt jedes Brennstoffzellenrohres der letzten Spannungsebene zur Kontaktierung über den Nickelfilz den hochtemperaturbeständigen Metallfilz die Ver-



bindung zur Stromableitung (11) des Stacks herstellt.

19. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, 10, 11 und 18, dadurch gekennzeichnet, daß die Verbindung zwischen Anodenseite am Austritt der Brennstoffzellenröhren und Stromableitung (11) so angeordnet ist, daß sie immer mit Anodengas benetzt ist und daher eine Oxidation ausgeschlossen ist.

20. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren Ansprüche 1 bis 8, 10, 11 und 18 bis 19, dadurch gekennzeichnet, daß innerhalb des Nickelfilzes oder des Hochtemperaturbeständigen Metallfilzes am Austritt starre Stromableitungen beweglich angebracht werden.

21. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, 10, 11 und 18 bis 20, dadurch gekennzeichnet, daß die Stackkonstruktion am Austritt der Brennstoffzellenröhren durch einen leitenden Düsenboden oder ein leitendes Netz (12) abgeschlossen sind.

22. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, 10, 11 und 18 bis 21, dadurch gekennzeichnet, daß die Austrittsseiten der Brennstoffzellenröhren und der leitende Düsenboden so ausgebildet und angeordnet sind, daß die Stickoxidbildung bei der Verbrennung des Anodenabgases weitgehend vermieden wird.

23. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß bei der Gegenstromanordnung (Fig. 3a) das Brenngas (3a) im Bereich des Luftaustritts zugegeben und der Austrittsbereich der Verbrennungsluft so gestaltet wird, daß die Stromableitung der Kathodenseite — gasdicht ausgeführt — den Zellbereich und den Austrittsbereich trennt, so daß keine Mischung von Anodenabgas und frischem Brenngas erfolgt.

24. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das frische Brenngas entgegen der Strömung der Verbrennungsluft entlang zum Lufteintritt geführt ist und dort das bei der Verbrennungsreaktion entstandene Brenngas — Produktgas — Gemisch umgelenkt und beispielsweise durch Kanäle, die insbesondere röhrenförmig ausgebildet sind, zum Bereich des Luftaustritts geführt und in der Nachbrennkammer mit dem Brenngasrest verbrannt wird.

25. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Abschluß des Stacks zur Seite (13) hin so erfolgt, daß kein Kurzschluß zwischen den einzelnen Spannungsebenen erfolgen kann und dazu durchgehende keramische Wände oder Kombinationen aus metallischen Wänden mit keramischen Isolationsstücken im Übergangsbereich zwischen den einzelnen Spannungsebenen eingesetzt sind.

26. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Verbrennungsluft (2a) von einer Versorgungsleitung (14) kommend zu dem Luftkasten (16) geführt ist und von dort in die Kathodenseite der Brennstoffzellen (1) eintritt.

27. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Brenngas (3a) über eine

Brenngasleitung (15) seitlich an mehreren Stellen und/oder über eigene Düsen in der Lochplatte (7) in das Stack (17) geführt wird.

28. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Stack (17) ähnlich wie ein Flachbrenner aufgebaut ist.

29. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß kreisförmige, ringförmige oder sechseckige Formen für das Stack (17) oder fast beliebige Grundrisse vorgesehen sind, wenn es die Einbausituation erfordert und die Versorgung mit Luft und Brennstoff sichergestellt werden kann.

30. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Nachbrennkammer (8) als gemeinsame Brennkammer ausgebildet ist.

31. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Kühlrohre (18) als Strahlungskühler angeordnet sind.

32. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden der Ansprüche 1 bis 29, dadurch gekennzeichnet, daß die Kühlrohre parallel zu den Zellrohren im Stack geführt werden und die Kühlrohre aus Isolatormaterial bestehen, um Kurzschlüsse im Stack zu vermeiden.

33. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß eine Kombination von im Stack integrierten Kühlrohren mit außenliegenden Kühlrohren eingesetzt ist.

34. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Brennstoffaufbereitung so erfolgt, daß die an der Brennstoffzelle freiwerdende Wärme unmittelbar für den endothermen Prozeß der Brennstoffaufbereitung eingesetzt ist und daß dazu die Anzahl von Röhren (18), die für die Abdeckung des Wärmebedarfs der Brennstoffaufbereitung nötig sind, mit Katalysatormaterial gefüllt sind.

35. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß bei dem Einsatz von Kohle- oder Biomassevergasung in einer allothermen Vergasung die von den Stacks beheizten Röhren (18) und/oder die Nachbrennkammer (8) als Wärmequelle für die allotherme Vergasung dienen.

36. Brennstoffzelleneinrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß ein durchgehendes poröses Trägerrohr aus einem elektrisch nichtleitenden Werkstoff gleicher Wärmeausdehnung wie der Elektrolytwerkstoff verwendet wird und auf diesem Trägerrohr Kathodenmaterial, Elektrolyt und Anode als separate Zellen oder Zellabschnitte sowie der Interconnector zwischen den einzelnen Zellen durch eine geeignete Dünnschichttechnik und/oder Sintertechnik aufgebracht sind.

Hierzu 4 Seite(n) Zeichnungen

- Leerseite -



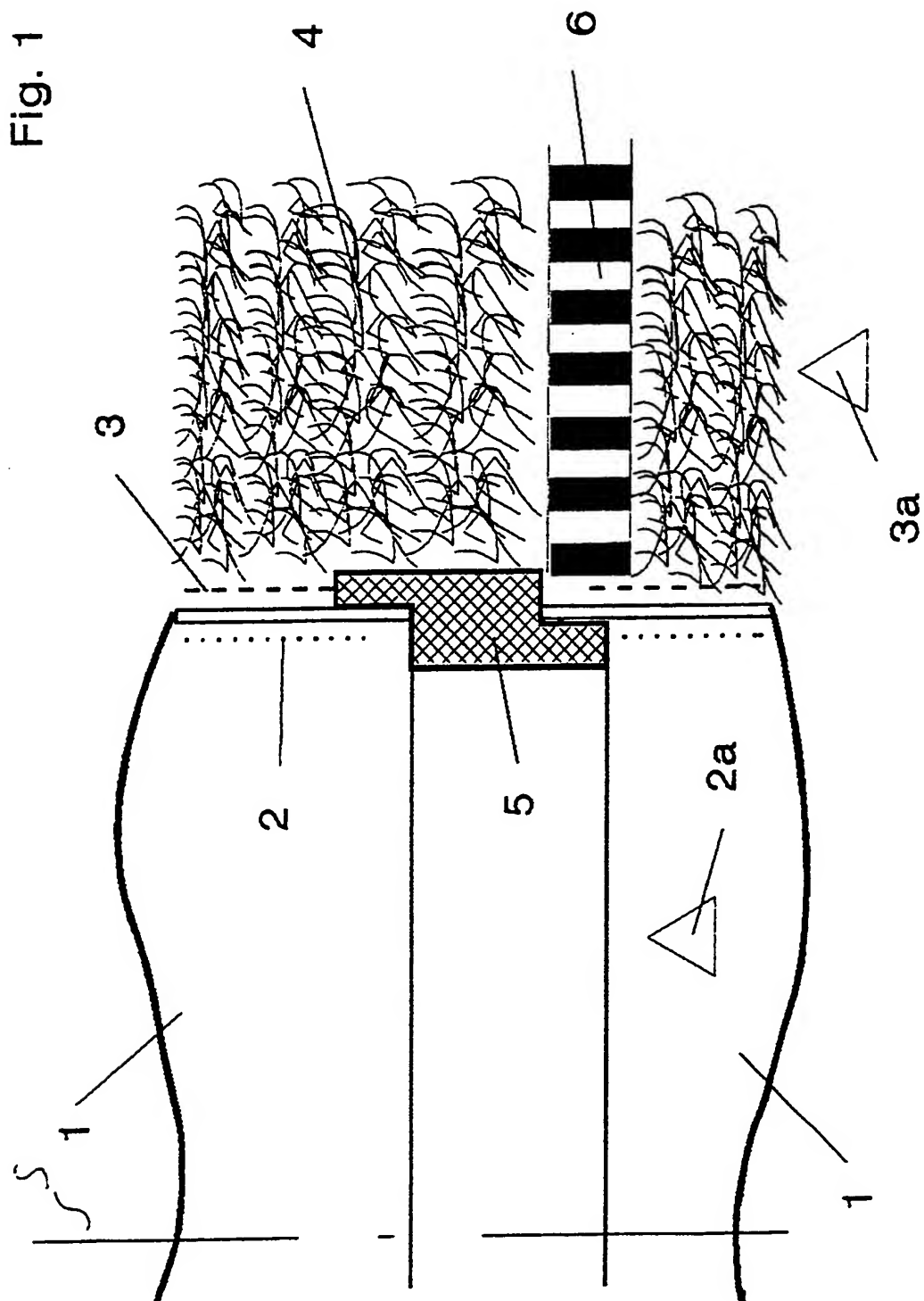


Fig. 2

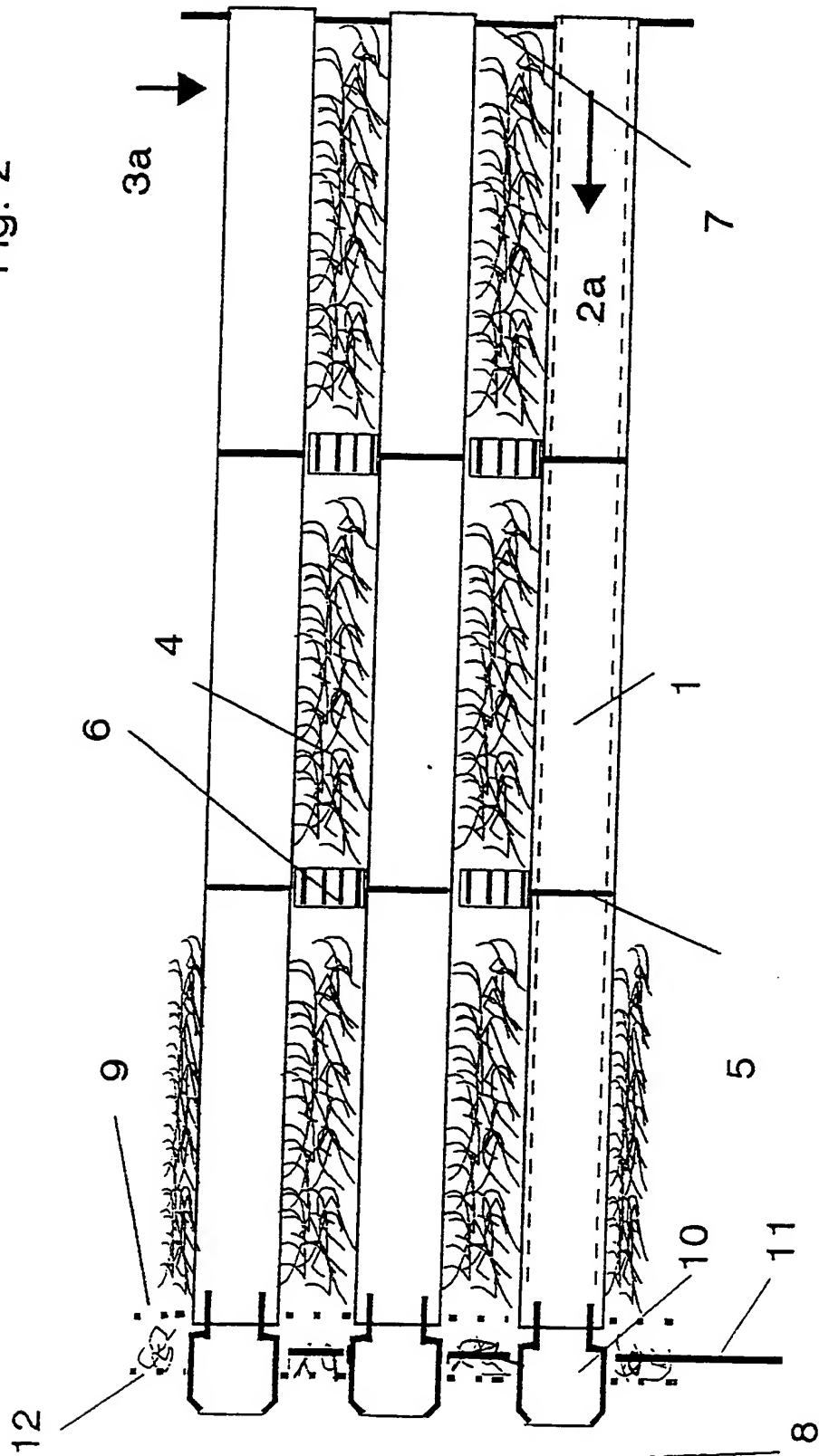


Fig. 3b

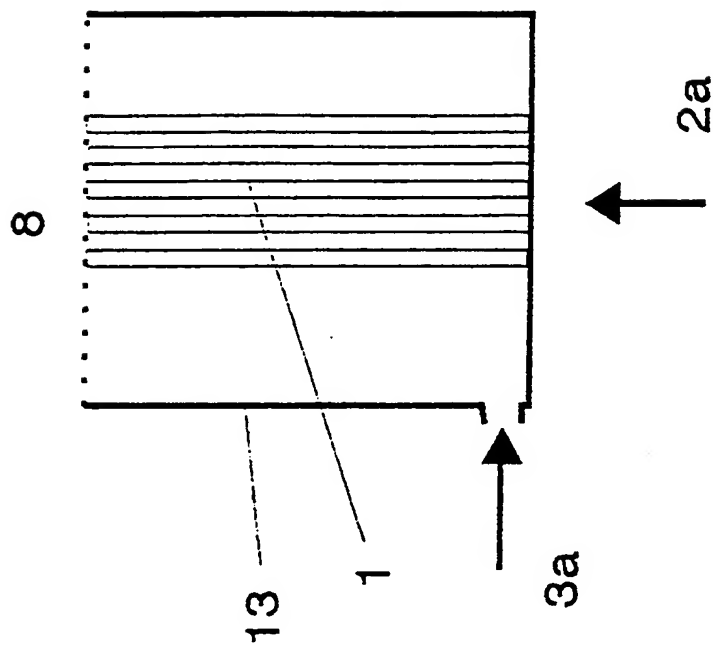
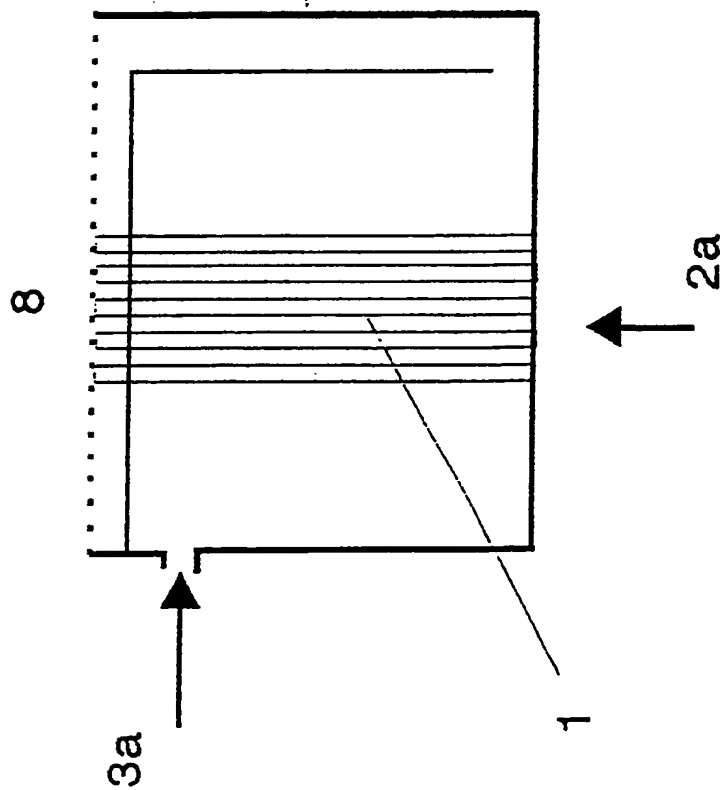
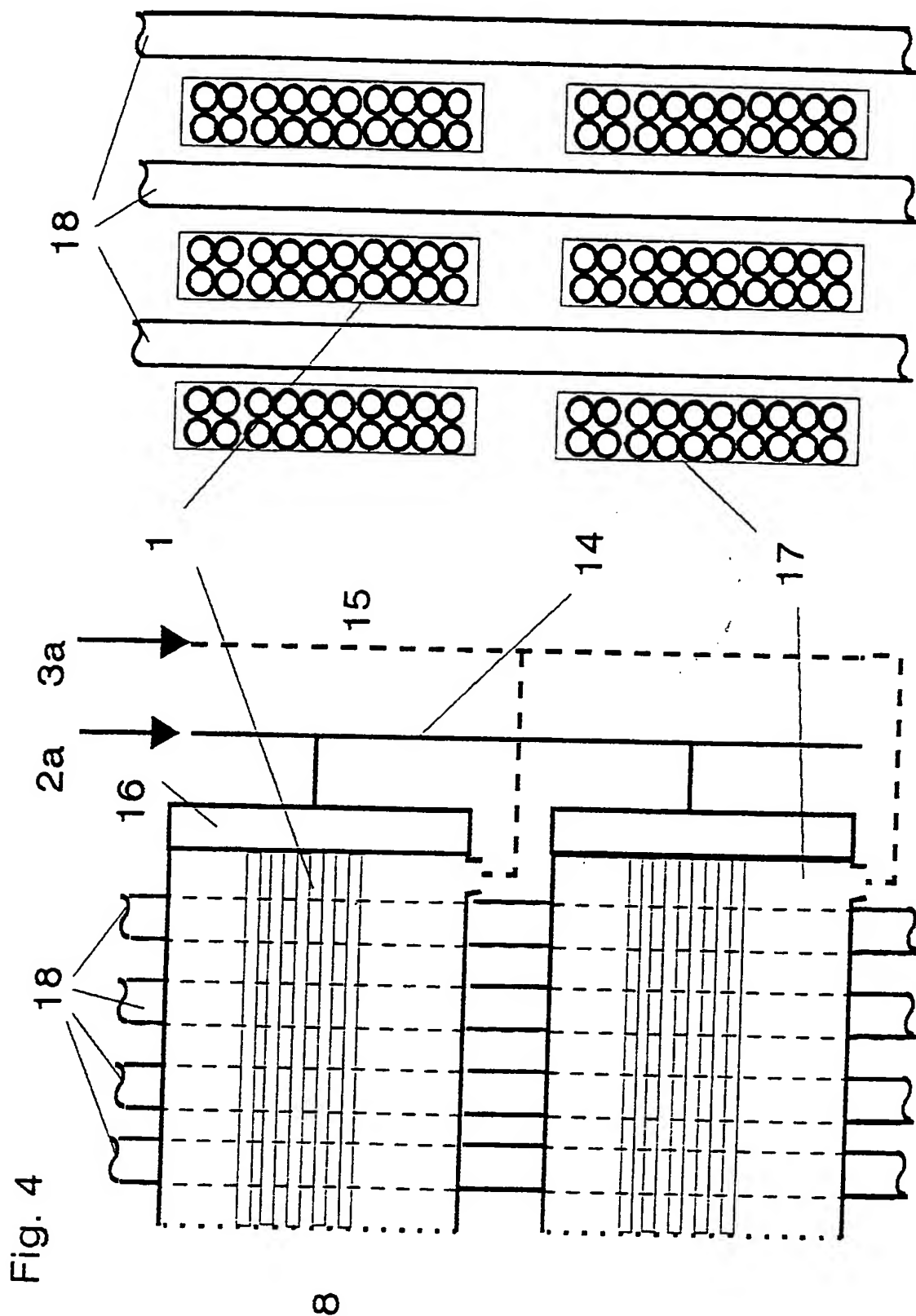


Fig. 3a





**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**